

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

17.07.03

REC'D 05 SEP 2003

WIPO

PCT

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日                      2 0 0 3 年    7 月 1 7 日  
Date of Application:

出 願 番 号                      特 願 2 0 0 3 - 1 9 8 3 9 7  
Application Number:  
[ST. 10/C]:                      [ J P 2 0 0 3 - 1 9 8 3 9 7 ]

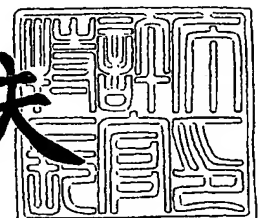
出      願      人                      本 田 技 研 工 業 株 式 会 社  
Applicant(s):

**PRIORITY  
DOCUMENT**  
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

2 0 0 3 年    8 月 2 2 日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今 井 康 夫



Best Available Copy

【書類名】 特許願

【整理番号】 H1031864

【提出日】 平成15年 7月17日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 B21C 23/00

【発明者】

    【住所又は居所】 埼玉県狭山市狭山1丁目10番地1 ホンダエンジニア  
                                リング株式会社内

    【氏名】 船木 光弘

【発明者】

    【住所又は居所】 埼玉県狭山市狭山1丁目10番地1 ホンダエンジニア  
                                リング株式会社内

    【氏名】 大山 真哉

【発明者】

    【住所又は居所】 埼玉県狭山市狭山1丁目10番地1 ホンダエンジニア  
                                リング株式会社内

    【氏名】 堀向 俊之

【特許出願人】

    【識別番号】 000005326

    【氏名又は名称】 本田技研工業株式会社

【代理人】

    【識別番号】 100085257

    【弁理士】

    【氏名又は名称】 小山 有

【選任した代理人】

    【識別番号】 100103126

    【弁理士】

    【氏名又は名称】 片岡 修

## 【手数料の表示】

【予納台帳番号】 038807

【納付金額】 21,000円

## 【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9722915

【包括委任状番号】 9304817

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 銅複合材の製造方法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 銅マトリックス中に硼化チタンが分散した銅複合材の製造方法であって、以下の①～③の工程からなることを特徴とする銅複合材の製造方法。

- ①銅粉末とチタン粉末と硼素粉末とを混合して 1 次形状体とする工程。
- ②前記 1 次形状体に熱エネルギーを与え前記チタン粉末と硼素粉末とを反応させて銅マトリックス中に硼化チタンを生成させる工程。
- ③前記硼化チタンが形成された 1 次形状体を塑性変形せしめて歪を付与して 2 次形状体とする工程。

【請求項 2】 請求項 1 に記載の銅複合材の製造方法において、前記塑性変形せしめて歪を付与する工程と同一工程、若しくはその後の工程で 2 次形状体に熱処理を施すことを特徴とする銅複合材の製造方法。

【請求項 3】 請求項 1 または請求項 2 に記載の銅複合材の製造方法において、前記塑性変形は 200%以上の伸びに相当する歪を付与することを特徴とする銅複合材の製造方法。

【請求項 4】 請求項 1 乃至請求項 3 に記載の銅複合材の製造方法において、前記塑性変形は素材温度を 400℃以上 1000℃以下で行う押出しであることを特徴とする銅複合材の製造方法。

【請求項 5】 請求項 1 乃至請求項 3 に記載の銅複合材の製造方法において、前記塑性変形は金型温度を 400℃以上 500℃以下で行う押出しであることを特徴とする銅複合材の製造方法。

【請求項 6】 請求項 1 乃至請求項 5 に記載の銅複合材の製造方法において、前記 1 次形状体は圧粉成形または管に混合粉末を充填することで得ることを特徴とする銅複合材の製造方法。

【請求項 7】 請求項 1 乃至請求項 6 に記載の銅複合材の製造方法において、前記セラミック粉末の平均粒径は 0.3～10  $\mu\text{m}$  とし、また得られる 2 次形状体の母材の平均粒径は 20  $\mu\text{m}$  以下、硼化チタン粒子の平均粒径は 500 nm

以下であることを特徴とする銅複合材の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、溶接の電極材料や電気自動車に用いるコネクタなどとして好適する銅複合材の製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】

銅マトリックス中にアルミナなどの酸化物を分散させた銅合金は導電性及び耐熱性に優れるため電気部品材料に広く利用され、この銅合金の特性や製法を改善する提案が多数なされている。

例えば、内部酸化する元素としてアルミニウムのみでなく、第3の元素としてスズを添加し、導電性と軟化特性を改善する提案がなされている。(特許文献1)

【0003】

また、アトマイズ法にて製造した $300\mu\text{m}$ 以下のアルミニウムなどの易酸化性金属を固溶させた銅合金粉末を用いることで、 $50\mu\text{m}$ 以下の粒子が70重量%以上となるものが提案されている。(特許文献2)

【0004】

また、Cu-Al合金粉末を内部酸化してAlを $\text{Al}_2\text{O}_3$ にした後、この合金粉末の表面を平滑にし、その後圧粉成形して成形体とし、この成形体を $600\sim 1000^\circ\text{C}$ で熱間鍛造する方法が提案されている。(特許文献3)

【0005】

また、Alを含む板状銅合金を内部酸化せしめてAlを $\text{Al}_2\text{O}_3$ にした後、この板状合金をコイル状にし、このコイル状合金を金属管内に密封し、この金属管を所望形状に $900^\circ\text{C}$ で熱間加工する方法が提案されている。(特許文献4)

【0006】

また、Cu-Al合金の切粉を内部酸化せしめて得た合金粉末をカーボン型内に充填し、 $900^\circ\text{C}$ 、 $400\text{kg}/\text{cm}^2$ の圧力でホットプレスする方法が提案

されている。(特許文献5)

【0007】

また、Cu-Al合金粉末の内部に $Al_2O_3$ の環状硬質層が存在するようにして焼結性を高める方法が提案されている。(特許文献6)

【0008】

更に、銅合金ではなくアルミニウム合金であるが、組織を微細化して靱性を高めるため、アルミニウム合金に1回の押出しにおいて200%以上或いは220%以上の伸びに相当する歪量の剪断変形を300℃以下の温度で与える方法が提案されている。(特許文献7、特許文献8)

【0009】

【特許文献】

- 特許文献1：特開昭59-150043号公報 特許請求の範囲  
特許文献2：特開昭60-141802号公報 特許請求の範囲  
特許文献3：特開昭63-241126号公報 第2頁右上欄6行～11行  
特許文献4：特開平2-38541号公報 第3頁右上欄16行～左下欄最終行  
特許文献5：特開平2-93029号公報 第3頁右下欄15行～第4頁左上欄17行  
特許文献6：特開平4-80301号公報 特許請求の範囲  
特許文献7：特開平9-137244号公報  
特許文献8：特開平11-114618号公報

【0010】

【発明が解決しようとする課題】

上述した先行技術のうち特許文献1～6にあつては、いずれも高温での熱間加工を行うため、粒成長によって組織が粗大化する傾向にあり、溶接の電極材料や電気自動車のコネクタとして要求される特性を同時に満足するものを得ることができない。

一方、特許文献7、8によれば微細化した組織が得られるが、この文献には銅合金については何ら開示されておらず、特に銅にセラミックスを混合した複合材について、どのような製法とすべきかについては何ら示唆されていない。

## 【0011】

そこで、本発明者らは先に特願2003-000919号として、銅粉末とセラミック粉末（アルミナまたは硼化チタン）とを混合し、この混合粉末を1次形状体とし、この1次形状体に歪を付与しながら押出しを施す提案を行っているが、更に特性の向上した銅複合材の製造方法が望まれる。

## 【0012】

## 【課題を解決するための手段】

上記課題を解決するため、本発明は以下の①～④の工程から銅マトリックス中に硼化チタンが分散した銅複合材の製造方法を構成した。

- ①銅粉末とチタン粉末と硼素粉末とを混合して1次形状体とする工程。
- ②前記1次形状体に熱エネルギーを与え前記チタン粉末と硼素粉末とを反応させて銅マトリックス中に硼化チタンを生成させる工程。
- ③前記硼化チタンが形成された1次形状体を塑性変形せしめて歪を付与して2次形状体とする工程。

上記のように、銅粉末に硼化チタンを混合するのではなく、反応によって硼化チタンとなるチタン粉末と硼素粉末を銅マトリックス中に生成せしめることで、微細な粒子とし機械的強度を高めることができる。

例えば、チタン粉末及び硼素粉末の平均粒径を $0.3 \sim 10 \mu\text{m}$ とすれば、得られる2次形状体の母材の平均粒径は $20 \mu\text{m}$ 以下、硼化チタン粒子の平均粒径を $400 \text{ nm}$ 以下とすることができ、溶接の電極材料として溶接時の加圧による変形（素材の圧縮強度が低いため）が小さいものを得ることができる。

## 【0013】

また、1次形状体に熱エネルギーを与える際に、一部のチタン及び硼素は銅に固溶するが、この固溶状態のチタン及び硼素が未反応のまま残っていると導電性及び熱的特性に劣ることになる。そこで、塑性変形せしめて歪を付与する工程と同一工程、若しくはその後の工程で2次形状体に熱処理を施し、未反応の固溶元素（チタン及び硼素）を析出せしめることが好ましい。

## 【0014】

前記塑性変形としては例えば200%以上の伸びに相当する歪を付与する。塑

性変形を付与する手段としては、押出し、引き抜き、せん断、圧延または鍛造などが考えられ、例えば素材温度を $400^{\circ}\text{C}\sim 1000^{\circ}\text{C}$ とし、 $400^{\circ}\text{C}\sim 500^{\circ}\text{C}$ の金型を用い、押出し速度 $0.5\sim 2.0\text{ mm/sec}$ で行う側方押出しが有効であり、また押出しの回数は $10\sim 20$ 回繰り返すことが必要である。

#### 【0015】

押出しの素材温度を $400^{\circ}\text{C}\sim 1000^{\circ}\text{C}$ としたのは、 $400^{\circ}\text{C}$ 未満では変形抵抗が大きく押出しが困難となり、母相（マトリックス）と粒子間に十分な結合強度が得られなくなり、また $1000^{\circ}\text{C}$ を超えると、銅の融点を超過溶解してしまい、歪の付与ができないためである。また、金型温度を $400^{\circ}\text{C}\sim 500^{\circ}\text{C}$ としたのは、金型温度が低くなりすぎると押出しが困難になり、金型温度が高くなりすぎると金型自体がなまされてしまうからである。

また、押出し速度は速いほど歪が入りやすいが、 $0.5\sim 2.0\text{ mm/sec}$ としたのは、 $0.5\text{ mm/sec}$ 未満では製造時間がかかり好ましくなく、 $2.0\text{ mm/sec}$ を超えると金型との摩擦が上昇し、金型寿命が極端に短くなるので、上記範囲が好ましい。

また、押出しを行うには合金粉末を所定の形状（1次形状）にする必要があるが、そのためには、圧粉成形または管に混合粉末を充填する等の手段が考えられる。

#### 【0016】

##### 【発明の実施の形態】

以下に本発明の実施の形態を添付図面に基づいて説明する。図1は本発明に係る銅複合材を得る工程を説明した図であり、いずれも出発原料としては母材（Cu粉末）にチタン（Ti）粉末および硼素（B）粉末を混合する。混合割合はチタン粉末および硼素粉末とも $0.1\text{ wt}\%\sim 5.0\text{ wt}\%$ とする。 $0.1\text{ wt}\%$ 未満では耐磨耗性が向上せず、 $5.0\text{ wt}\%$ を超えると導電率が低下し、金型の寿命も短くなるため、上記の範囲となる。

#### 【0017】

次いで上記の混合粉末を側方押出しするために1次形状体とする。1次形状体を得る工程は2つある。目的とする製品がコネクタや電極棒などのように小物



の場合にはCu管に上記混合物を充填して1次形状体とする。一方、目的とする製品が長尺であったり、大寸法の場合には圧粉成形によって1次形状体とする。

#### 【0018】

次いで上記1次形状体を焼結せしめる。この焼結に伴う熱エネルギーによって、添加したチタン(Ti)と硼素(B)が反応し、硼化チタンが生成される。図3は焼結後の組織の状態を示す。この図から、焼結前には生成されていなかった硼化チタンが焼結後には銅マトリックス内に生成していることが分る。

尚、実施例では熱エネルギーを付与する手段として焼結を行ったが、これ以外の手段で熱エネルギーを付与してもよい。

#### 【0019】

上記によって得られた焼結後の1次形状体に側方押出しによって200%以上、好ましくは約220%の伸びに相当する歪を与える。

尚、図2はCu管を用いた例を説明したものであるが、図ではCu管の径を側方押出し金型に形成した挿入孔の径よりも大きくしているが、実際はCu管の径と金型に形成した挿入孔の径は略等しく、またパンチでCu管を押し込む際にCu管が倒れないように治具等を用いて支持しておく。

#### 【0020】

側方押出しの具体的な条件としては、素材温度を400～1000℃、金型温度を400～500℃とし、押し出し速度を約1mm/secとして、12回繰り返して押し出すECAE(equal-channel-angular-extrusion)処理を施す。この繰り返して、母相の微細化と銅マトリックス内に生成した硼化チタンの粉碎・分散が生じる。

#### 【0021】

図4は強加工(220%の伸びに相当する歪を与える)した場合としない場合の導電率とTiBの添加量との関係を示す図であり、この図から強加工することによって導電率が向上することが判明した。これは、前記の熱処理で導電性の硼化チタンが生成されるが、添加されたチタンと硼素が化学量論的に反応するわけではなく、固溶状態のチタンおよび硼素が未反応のまま銅マトリックス内に残っており、これが導電率を上げられない原因となっている。そこで、強加工すると

未反応の固溶元素（チタンおよび硼素）が析出し、導電率が向上すると考えられる。

#### 【0022】

また、図5は本発明に係る銅複合材と従来の銅複合材の溶接性を連続打点数で比較したグラフであり、銅にアルミナを分散せしめた市販の銅複合材を溶接チップとした場合の打点数が1200前後であるのに対し、ECAE（equal-channel-angular-extrusion）処理を施したアルミナ分散銅複合材では打点数は1600前後、硼化チタンを分散せしめた本発明に係る銅複合材を溶接チップとした場合にはあつては、1900打点が可能であつた。

#### 【0023】

##### 【発明の効果】

以上に説明したように、本発明に係る銅複合材の製造方法によれば、溶体化処理を出発点としていないので、固溶限界による制限がなく、銅に添加するチタンや硼素を任意に設定でき、従来の銅複合材では得られなかった特性を得ることができる。

特に、銅に直接硼化チタンを添加するのではなく、反応前のチタンと硼素を加え、これに熱エネルギーを加えることで反応により銅マトリックス中に硼化チタンを生成するようにしたことで、組織の微細化（ナノオーダー：数百nm以下）が促進され、機械的強度が向上する。

##### 【図面の簡単な説明】

##### 【図1】

本発明に係る銅複合材の製造方法を説明した図

##### 【図2】

銅パイプに充填して銅複合材を製造する方法を説明した図。

##### 【図3】

焼結後の組織の状態を示す顕微鏡写真

##### 【図4】

強加工した場合としない場合の導電率とTi, Bの添加量との関係を示す図

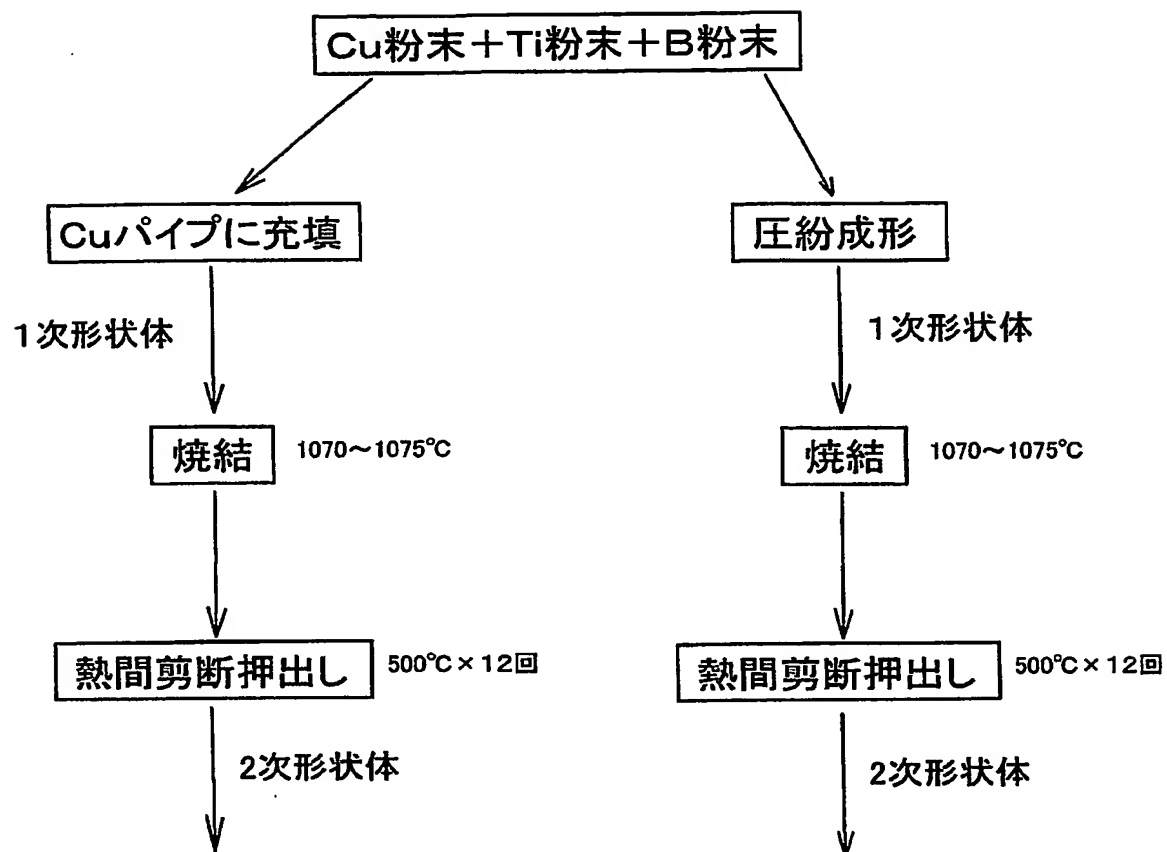
##### 【図5】

本発明に係る製造方法で得られた銅複合材と従来の銅複合材の溶接性を連続打  
点数で比較したグラフ

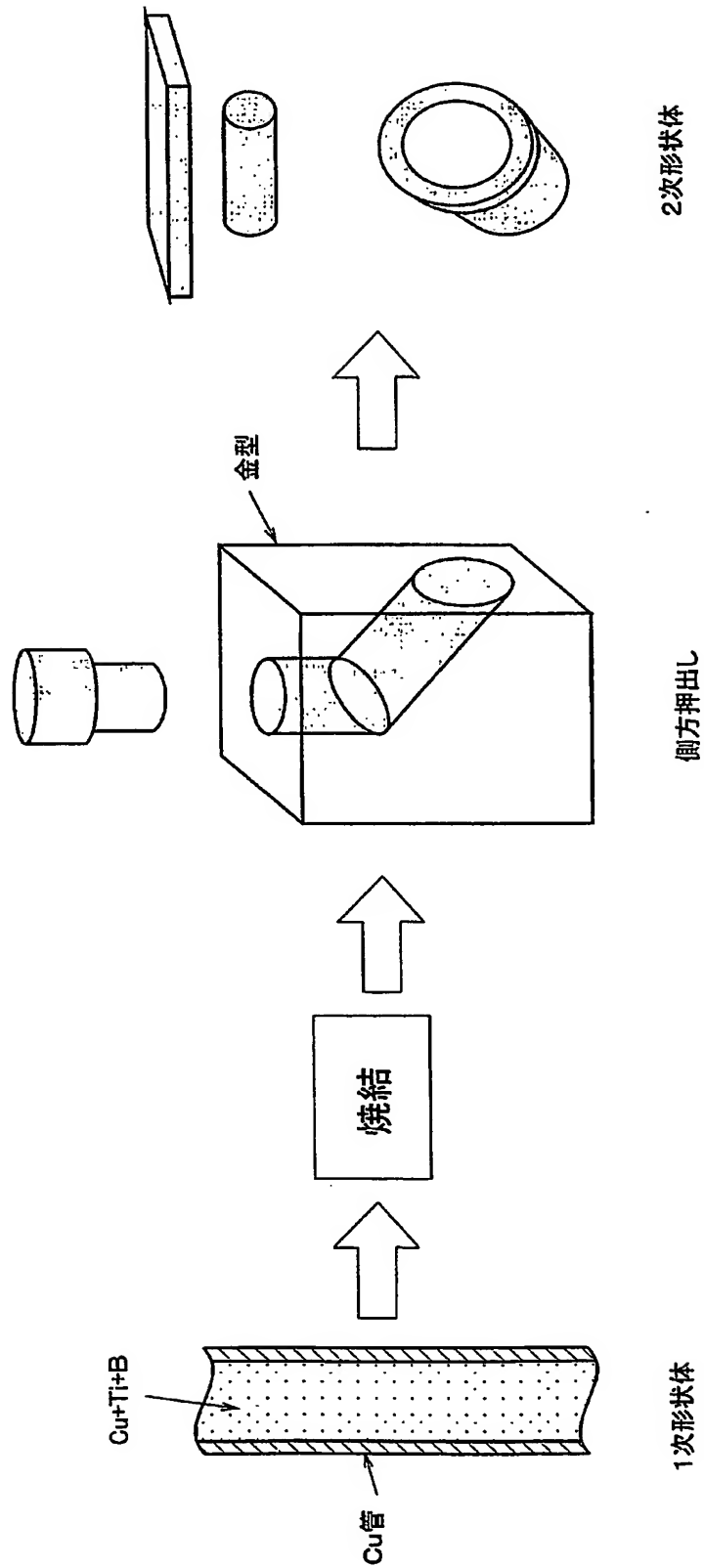
【書類名】

図面

【図1】



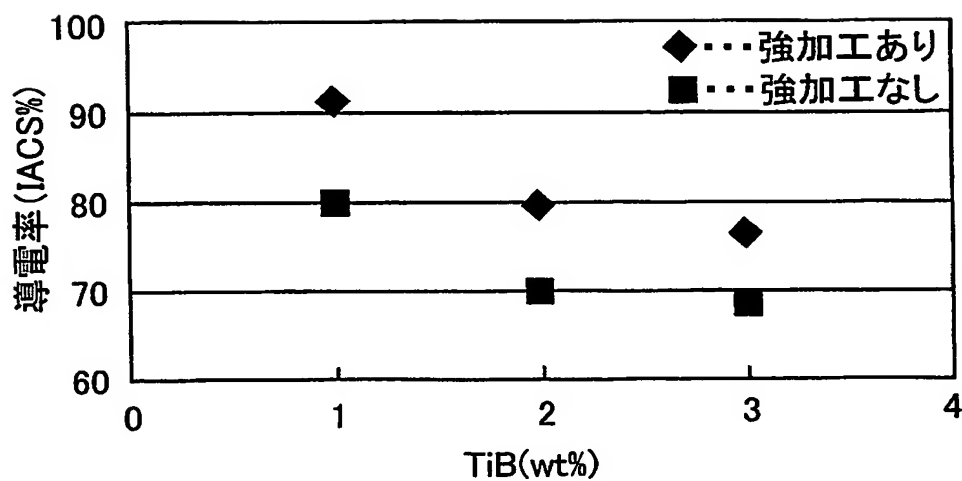
【図 2】



【図3】

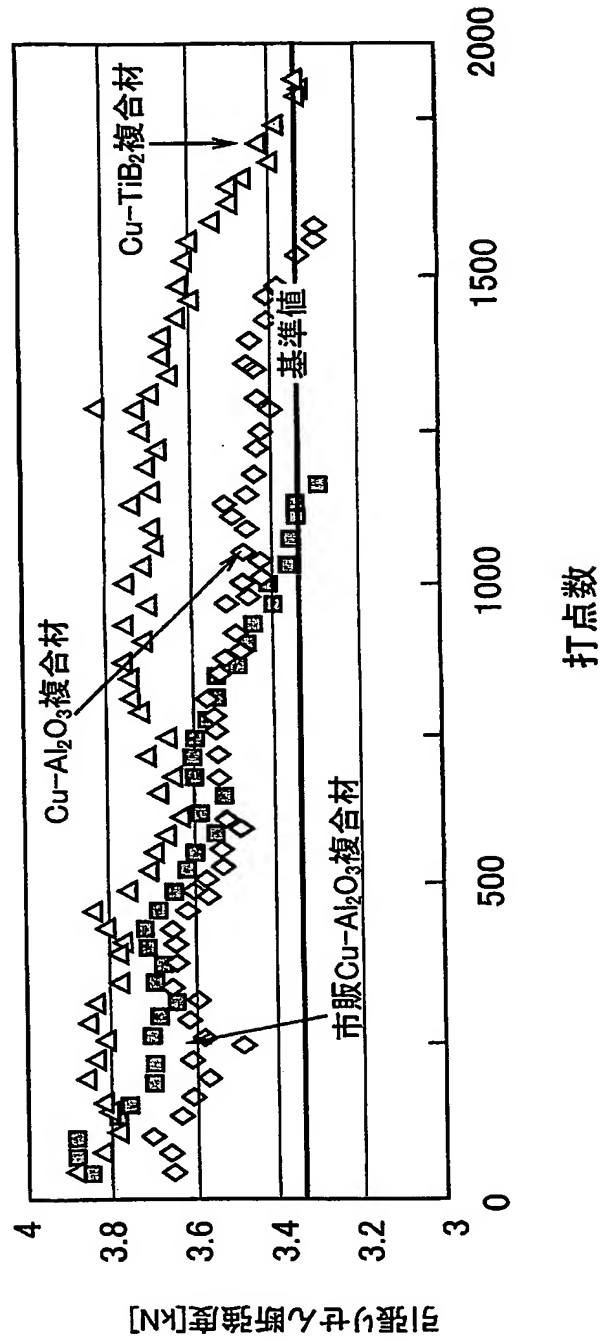


【図4】



Cu-TiBの強加工(200%の伸びに相当する歪)による導電率変化

【図 5】



【書類名】 要約書

【課題】 機械的強度と熱的・電気的特性に優れた特性を銅複合材に付与する方法を提供する。

【解決手段】 銅粉末とチタン粉末と硼素粉末とを混合して1次形状体とし、次いで前記1次形状体に熱エネルギーを与え前記チタン粉末と硼素粉末とを反応させて銅マトリックス中に硼化チタンを生成させ、この後、前記硼化チタンが形成された1次形状体を塑性変形せしめて歪を付与して2次形状体とする。硼化チタンを生成させることで組織の微細化が図れ、歪を付与することで、未反応の固溶元素（チタンと硼素）を析出せしめることができる。

【選択図】 図1



特願 2 0 0 3 - 1 9 8 3 9 7

出 願 人 履 歷 情 報

識別番号

[ 0 0 0 0 5 3 2 6 ]

1. 変更年月日

1 9 9 0 年 9 月 6 日

[変更理由]

新規登録

住 所

東京都港区南青山二丁目 1 番 1 号

氏 名

本田技研工業株式会社

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☒ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☒ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☒ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☒ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**